

# RESONATING ORGANIC MEMBRANE EL ELEMENT

Publication number: JP9190883

Publication date: 1997-07-22

Inventor: KAWAKAMI TAKESHI; UTSUKI KOJI

Applicant: NIPPON ELECTRIC CO

Classification:

- international: H01L51/52; H01L51/50; (IPC1-7): H05B33/14; H05B33/26

- european:

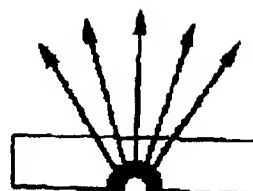
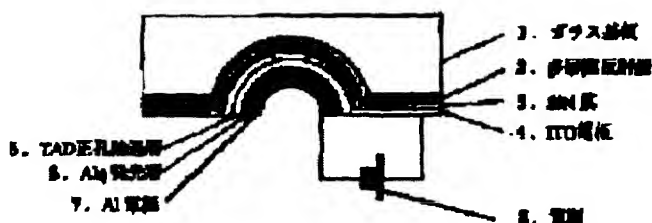
Application number: JP19950354362 19951229

Priority number(s): JP19950354362 19951229

Report a data error here

## Abstract of JP9190883

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To expand the visual field angle while maintaining a high beam pickup efficiency, by forming a resonator structure of emission part to a recess formed on a base plate. **SOLUTION:** While a recess is formed on a glass base plate 1, a multilayer film reflecting mirror 2 to be a translucent reflector and an SiN film 3 are formed on the whole area at the recess side, and an ITO electrode 4 is formed thereover. Furthermore, by forming a TAD positive hole transport layer 5, an Alq emission layer 6, and an Al electrode 7, the emission part is made in a recessed surface structure. In the organic membrane EL element of such a layer structure, a resonator is to be composed by the multilayer reflecting mirror 2 and the Al electrode 7, a superposition of wave motions transmitted at the wavelength according to the effective resonator length which is decided by the thickness of the SiN film 3 in generated, and an increase of the EL emission is observed. And since the emission part has a recessed surface, even though the expansion of the emission from a unit area is 30 deg., it can be expanded to 40 deg. to be the full reflection critical angle as the whole.



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-190883

(43)公開日 平成9年(1997)7月22日

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>

H 0 5 B 33/14  
33/26

識別記号

庁内整理番号

F I

H 0 5 B 33/14  
33/26

技術表示箇所

審査請求 有 請求項の数5 F D (全 5 頁)

(21)出願番号 特願平7-354362

(22)出願日 平成7年(1995)12月29日

(71)出願人 000004237

日本電気株式会社  
東京都港区芝五丁目7番1号

(72)発明者 川上 威

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株  
式会社内

(72)発明者 宇津木 功二

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株  
式会社内

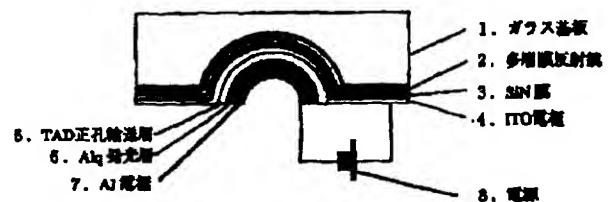
(74)代理人 弁理士 後藤 洋介 (外2名)

(54)【発明の名称】 共振器型有機薄膜EL素子

(57)【要約】

【課題】 高い光取り出し効率を有する共振器型有機薄膜EL素子において、簡単な構造で視野角の拡大を図ること。

【解決手段】 基板表面に共振器型有機薄膜EL発光部を形成してなる有機薄膜EL素子において、発光部を凹面構造にした。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 透明部材による基板上に凹部を形成し、この凹部に、共振器構造の発光部を形成したことを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子。

【請求項2】 透明部材による基板の一面側に共振器構造の発光部を形成した共振器型有機薄膜EL素子において、前記基板の他面側における光取り出し部に光屈折部を形成したことを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子。

【請求項3】 請求項2記載の共振器型有機薄膜EL素子において、前記光屈折部は、高屈折率イオンを含む基板にパターンニングを施し、低屈折率イオン熔融塩中に浸漬させることによる選択的イオン交換で形成されることを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子。

【請求項4】 透明部材による基板の一面側に共振器構造の発光部を形成した共振器型有機薄膜EL素子において、前記基板の他面側に光拡散部を形成したことを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子。

【請求項5】 請求項4記載の共振器型有機薄膜EL素子において、前記光拡散部は、前記基板の他面に素子の波長オーダーの表面粗さを与えることにより形成されることを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、自発光型で、例えば薄型平面上の高精細な表示手段として用いられる有機EL（エレクトロルミネッセンス）素子に関し、特に共振器型の有機薄膜EL素子に関する。

【0002】

【従来の技術】タング（Tang）らによって報告された新しいタイプの有機薄膜EL素子は、アプライド・フィジックス・レターズ（Applied Physics Letters）、51巻、913ページ、1987年に開示されており、フラット基板、陽極、正孔輸送層、発光層、陰極によって構成されている。陽極としては、フラットなガラス基板に形成された酸化インジウム錫合金（ITO）、正孔輸送層1、1'-ビス（4-N, N'-ジトリルアミノフェニル）シクロヘキサン（以下、DTAPと略記する）、発光層はトリス（8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム）（以下、Alqと略記する）及び陰極はマグネシウム-銀合金から形成されている。

【0003】タングらの有機薄膜EL素子の発光動作原理は、大略以下のように考えられている。陽極から正孔輸送層に注入された正孔は発光層界面に向かって移動する。陰極からは電子が発光層に注入され、発光層内を移動する。正孔は正孔輸送層を経て発光層内に注入されるが、電子は正孔輸送層でブロックされるため、発光層の正孔輸送層との界面近傍で電子と正孔とが再結合する。このとき中性の安定な励起子が生成され、そのうち一重

項励起子は自然放出、すなわち発光を伴って基底準位へと自発遷移する。

【0004】現在開発されている有機薄膜EL素子は、基本的には、タングらの報告した素子構成及び材料の概念を基に、素子構成の改良をはじめ有機材料や電極等の改良が加えられ進展している。

【0005】ドダバラプア（Dodabalapur）らはこのような有機薄膜EL素子に共振器構造を導入した（米国特許5405710号）。従来の共振器型有機薄膜EL素子の概念図を図5に示す。図5を参照して、従来の共振器型有機薄膜EL素子は、ガラス基板1上に誘電体多層膜からなる半透明反射鏡である多層膜反射鏡2及びSiN膜3を形成し、その上にITO電極4（陽極）、トリウェニルジアミン誘導体（以下、TADと略記する）正孔輸送層5、Alq発光層6、Al電極7（陰極）を形成してなる。電源8は、TAD正孔輸送層5とAl電極7との間に接続されている。

【0006】このような層構造を有する有機薄膜EL素子においては、多層膜反射鏡2及びAl電極7により共振器が構成されることになり、SiN膜3の厚さで決まる共振器の実効共振器長に応じた波長で伝搬する波動の重ね合わせが生じ、単位角度、単位スペクトルでみた場合にEL発光の増大が観測されることになる。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】タングらの構造に類似する有機薄膜EL素子は低電圧で高輝度の発光が得られる反面、電流駆動型の素子であるために、高輝度を得るためには電流密度を大きくしなければならない。電流密度が大きくなるほど消費電力が大きくなり、且つ前述したように輝度の低下速度が著しくなる。このような現象の原因としては、注入された電子と正孔が有効に発光に結びつかないこと、すなわちELの量子効率が小さいことの他に、有機薄膜内で発生、放射される光を有効に外部に取り出していないこと、すなわち光の取り出し効率が低いことが考えられる。そこで、光の取り出し効率を上げ、効率を現状の1.5倍以上向上させることが有機薄膜EL素子の実用上の課題である。

【0008】光の取り出し効率が低い原因としては、次のようなことが挙げられる。基板としてフラット基板を用いた場合、等方発光源である有機薄膜層からの光は光取り出し側の基板や透明電極表面への入射角が臨界角を越えると全反射されるため、外部に取り出すことができない。そのため、光の取り出し効率はおおよそ25%に留まってしまい、このことは自発光型の発光素子においては原理的な問題である。

【0009】この問題を回避する方法の一例に共振器構造の導入が挙げられる。共振器の導入により出射光に指向性を持たせることが可能であり、有機薄膜からの発光を有効にガラス基板外部に取り出すことができる。例えば、高田らは、アプライド・フィジックス・レターズ

(Applied Physics Letters)、63巻、2032ページ、1993年、において、ガラス基板上にITO陽極、TAD正孔輸送層、ナフソスチリルアミン(NSD)発光層、オキサジアノール誘導体(OXD)電子輸送層、MgAg陰極をそれぞれ積層した構造の共振器型有機薄膜EL素子を用いた実験で、出射光の広がり角が半角でおよそ $30^\circ$ となったことを報告している。前述したガラス-空気界面での可視光の全反射臨界角はおよそ $40^\circ$ であるので、有機薄膜からの発光を有効に基板外部に取り出すことができていることになる。

【0010】しかし、一方で、共振器型の有機薄膜EL素子における出射光の指向性は、同時に視野角の縮小をもたらす。すなわち、図6に示すように、従来の共振器型有機薄膜EL素子においては出射光の指向性が高く、半角でおよそ $30^\circ$ の範囲内に射出される。ガラス基板-空気の可視光領域での全反射の臨界角は半角で約 $40^\circ$ なので、共振器型有機薄膜発光層からの発光は基板-空気界面で全反射されることなく有効に基板外部に取り出すことができることになる。しかし、同時にこのような構造の有機薄膜EL素子においては視野角も半角で $30^\circ$ ということになってしまい、例えばディスプレイ等への応用を考えると十分ではない。このことから、共振器型有機薄膜EL素子においては、高い光取り出し効率を維持したまま視野角を拡大することが課題である。

【0011】

【課題を解決するための手段】本発明によれば、透明部材による基板上に凹部を形成し、この凹部に、共振器構造の発光部を形成したことを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子が得られる。

【0012】本発明によればまた、透明部材による基板の一面側に共振器構造の発光部を形成した共振器型有機薄膜EL素子において、前記基板の他面側における光取り出し部に光屈折部を形成したことを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子が得られる。

【0013】なお、前記光屈折部は、高屈折率イオンを含む基板にパターンニングを施し、低屈折率イオン溶液塩中に浸漬させることによる選択的イオン交換で形成されることが好ましい。

【0014】本発明によれば更に、透明部材による基板の一面側に共振器構造の発光部を形成した共振器型有機薄膜EL素子において、前記基板の他面側に光拡散部を形成したことを特徴とする共振器型有機薄膜EL素子が得られる。

【0015】なお、前記光拡散部は、前記基板の他面に素子の波長オーダーの表面粗さを与えることにより形成されることが好ましい。

【0016】

【発明の実施の形態】図1は本発明の第一の実施の形態である湾曲構造を有する共振器型有機薄膜EL素子を示

す概念図である。この第一の実施の形態においては、ガラス基板1上に凹部を形成すると共に、この凹部側全域に誘電体多層膜からなる半透明反射鏡である多層膜反射鏡2及びSiN膜3を形成し、その上にITO電極4

(陽極)を形成する。更に、凹部にはTAD正孔輸送層5、Alq発光層6、Al電極7(陰極)を形成することにより、発光部を凹面構造としていることを特徴としている。ガラス基板1の凹部は、ガラス基板1を射出成型やプレス成型で形成したり、ガラス基板1に対してエッチング等の処理を施すことにより得られる。

【0017】このような層構造を有する有機薄膜EL素子においては、多層膜反射鏡2及びAl電極7により共振器が構成されることになり、SiN膜3の厚さで決まる共振器の実公共共振長に応じた波長で伝播する波動の重ね合わせが生じ、単位角度、単位スペクトルでみた場合にEL発光の増大が観測されることになる。

【0018】図4(a)に第一の実施の形態の光路の概略図を示す。この図4(a)から明らかなように、本発明の第一の実施の形態においては、発光部が凹面をなしているため、単位面積からの発光の広がり角は $30^\circ$ であっても、全体として全反射臨界角である $40^\circ$ まで拡大することができる。このような凹面構造によれば、凹部の曲率半径や発光層の面積等の最適化により所望の出射光広がりを与えることができる。

【0019】図2は本発明の第二の実施の形態である光屈折部を有する共振器型有機薄膜EL素子を表す概念図である。この第二の実施の形態においては、従来の共振器型有機薄膜EL素子の構造に加えて、ガラス基板1の光取り出し側に低屈折率イオン拡散部9による光屈折部を有していることを特徴としている。このような光屈折部としては、高屈折率イオンを含む平板基板ガラスにパターンニングを施し、低屈折率イオン溶液塩中に浸漬させることによる選択的イオン交換で形成する埋め込み型3次元分布屈折率レンズ等があるがこの限りではない。

【0020】図4(b)にこの第二の実施の形態の光路の概略図を示す。この場合は有機薄膜発光層からの発光は $30^\circ$ の広がりしか持たないが、低屈折率イオン拡散部9によって光が屈折し、ガラス基板1外部で広がる例である。この場合も出射光が基板-空気界面で全反射されることがないので高い光取り出し効率を実現することができる。また、低屈折率イオンの分布により、やはり所望の出射光広がりを得ることができる。

【0021】図3は本発明の第三の実施の形態である光拡散部を有する共振器型有機薄膜EL素子を表す概念図である。この第三の実施の形態においては、従来の共振器型有機薄膜EL素子の構造に加えて、ガラス基板1の光取り出し側に光拡散部10を形成したことを特徴としている。この種の光拡散部10は、ガラス基板1の表面に波長オーダーの表面粗さを与えることにより形成することができる。

【0022】図4(c)に第三の実施の形態の光路の概略図を示す。第二の実施の形態と同様に、この場合もガラス基板1の裏面で出射光を広げる構造であるため、高い光取り出し効率を実現することができる。また、この場合は拡散を利用しているため視野角は半角で90°となることを特徴としている。

【0023】以上、本発明を好ましい3つの実施の形態について説明したが、本発明に適用され得る有機薄膜EL素子の有機薄膜層は特に限定されず、発光層だけの単層構造のものや正孔輸送層、電子輸送層、陽極界面層、陰極界面層などを有するもの等あらゆる薄膜構造が適用可能である。また、発光層以外を形成する薄膜層としては、有機物質に限らず無機物質を用いた薄膜や有機物質と金属の混合体などの薄膜であっても有効である。また、有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

【0024】本発明における正孔輸送層の材料としては、特に限定されないが、例えばトリフェニルジアミン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ポルフィリン誘導体、スチルベン誘導体、アリアルアミン誘導体などを用いることができる。更に、正孔輸送化合物を既知の高分子を媒体として、これに分散した層として用いることもできる。前記高分子としては、正孔輸送性を極度に阻害しないものが望ましく、例えば、ポリ(ノビニルカルバゾール)、ポリカーボネート、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン系重合体、ポリシリレン系重合体、ポリチオフェン、ポリアニリン、ポリフェニレンビニレンなどが適用できる。

【0025】陽極界面層は安定な正孔注入を達成すべく導入するものであるが、有機薄膜層と陽極の密着性を保持する役目を担う必要がある。不必要に膜厚を大きくすることは、発光の駆動電圧を大きくしたり、薄膜表面に不均一発光を招く凹凸をもたらす可能性があり、前記陽極界面層は30nm以下の膜厚が望ましい。本発明において適用できる陽極界面層は例えば“色素ハンドブック：講談社‘86年”に記載されているスピロ化合物、アゾ化合物、キノン化合物、インジゴ化合物、ジフェニルメタン化合物、キナクリドン化合物、ポリメチン化合物、アクリジン化合物、ポルフィリン化合物等の縮合多環系の色素が適用できる。また、芳香族アミン等の“オーガニック セミコンダクターズ：フェルラック ケミエ社 (ORGANIC SEMICONDUCTORS: VERLAG CHEMIE) ‘74年”に記載されている低分子有機P型半導体も適用できる。

【0026】有機薄膜EL素子の発光層材料は特に限定されず、公知の発光材料を適用できる。例えば、8-ヒドロキシキノリノール及びその誘導体の金属錯体、テト

ラフェニルブタジエン誘導体、ジスチルアリアル誘導体、クマリン系誘導体、キナクリドン誘導体、ペリレン系誘導体、ポリメチン系誘導体、アントラセン誘導体、ポリビニルカルバゾールなどが挙げられる。発光層は単一成分でも他の発光材料をドーピングする系でも良い。

【0027】本発明においては必要に応じて電子輸送層を発光層と陰極の間に設けても良い。電子輸送材料は特に限定されるものではないが、8-ヒドロキシキノリノール及びその誘導体、オキサジアゾール誘導体、ジフェニルキノン誘導体などの適用が可能である。

【0028】有機薄膜EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上の仕事関数を有することが効果的である。陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅等が適用できる。陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましく、特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム合金等を主成分とする金属が使用できる。なお、素子を酸素や湿気から守る目的で、金属酸化物、金属硫化物、金属沸化物、有機化合物から成る公知の封止材料等から形成される封止層を設けることも有効である。

【0029】

【発明の効果】以上、複数の実施の形態をあげて説明したように、本発明における共振器型有機薄膜EL素子においては、きわめて簡単な構造で、共振器型有機薄膜EL素子の特徴である高い光取り出し効率を維持した上で、同時に視野角の拡大を図ることができる。従って、マトリクス型の有機薄膜ELディスプレイ等の発光装置への適用にも適しており、低消費電力の高精細デバイスの作成が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第一の実施の形態である湾曲構造を有する共振器型有機EL素子を示す概念図である。

【図2】本発明の第二の実施の形態である光屈折部位を有する共振器型有機EL素子を示す概念図である。

【図3】本発明の第三の実施の形態である光拡散部位を有する共振器型有機EL素子を示す概念図である。

【図4】本発明の第一～第三の実施の形態の共振器型有機EL素子の光路を示す概念図である。

【図5】従来の共振器型有機薄膜EL素子を表す概念図である。

【図6】従来の共振器型有機EL素子の光路を示す概念図である。

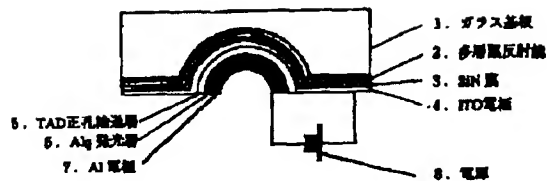
【符号の説明】

- 1 ガラス基板
- 2 多層膜反射鏡

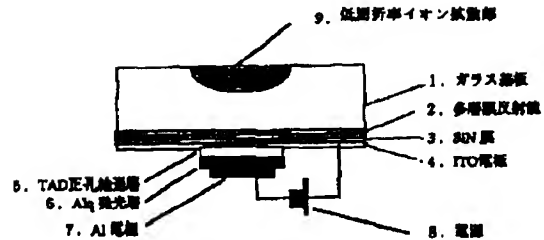
- 3 SiN膜
- 4 ITO電極
- 5 TAD正孔輸送層
- 6 Alq発光層

- 7 Al電極
- 8 電源
- 9 低屈折率イオン拡散部
- 10 光拡散部

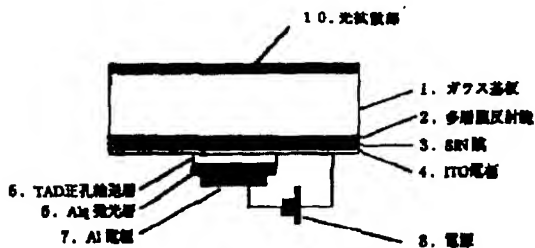
【図1】



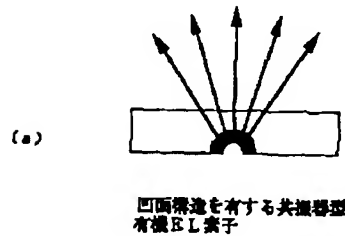
【図2】



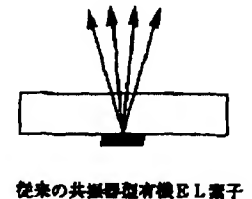
【図3】



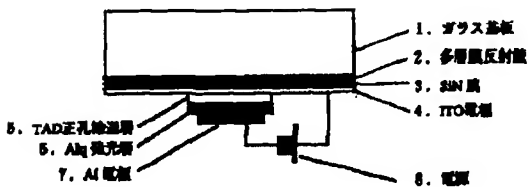
【図4】



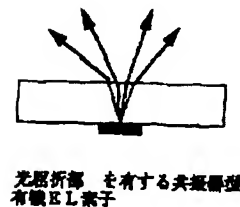
【図6】



【図5】



(b)



(c)

